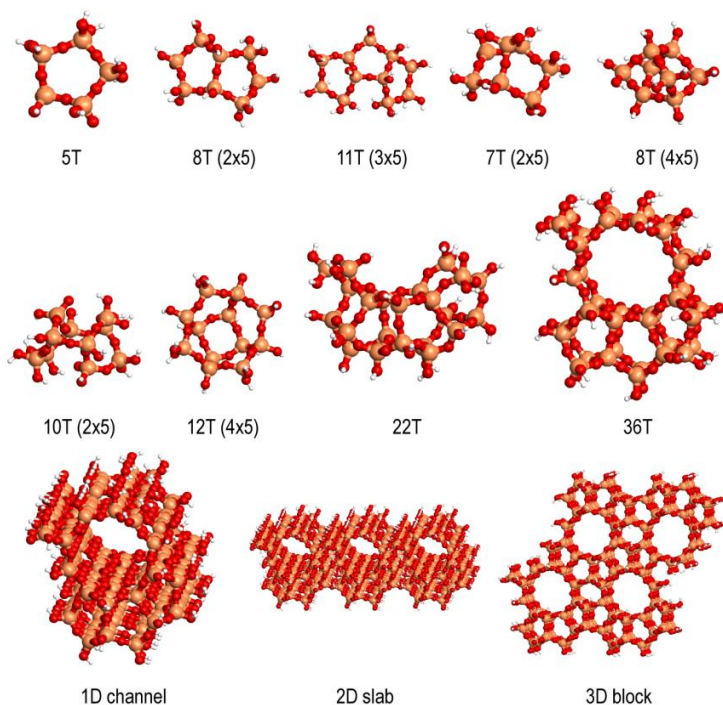


STUDIE VAN RADICALAIRE INTERMEDIAREN EN BEREKENING VAN DE CORRESPONDERENDE EPR SPECTRA IN NANOPOREUZE MATERIALEN

Keywords: Model Development, Spectroscopy, Computational Applications

Binnen de huidige olie-problematiek is er een enorme interesse naar het gebruik van alternatieve grondstoffen. Aardgas en biomassa kunnen bv. omgezet worden in methanol, wat op zijn beurt getransformeerd kan worden tot cruciale basiscomponenten van de huidige chemische industrie, nl. lichte olefines zoals etheen en propaan. Dit proces is het methanol-naar-olefines (methanol-to-olefins of MTO) mechanisme. Deze omzetting gebeurt m.b.v. een zure katalysator, nl. een zeolitisch materiaal. Dit is een microkristallijne structuur waarbinnen kleine moleculen kunnen diffunderen en reageren. De exacte details van de onderliggende reacties en intermediairen zijn echter nog niet volledig gekend. Verschillende routes werden reeds voorgesteld en onderzocht, zowel vanuit een experimenteel als een theoretisch oogpunt. Tot op heden waren deze steeds gebaseerd op carbokationen. Er zijn echter zeer recente aanwijzingen dat er ook **radicalaire intermediairen** belangrijk kunnen zijn.



Dergelijke radicalaire componenten bevatten een ongepaard elektron, verhogen de reactiesnelheid en kunnen het beste bestudeerd worden a.d.h.v. **EPR (Elektronische Paramagnetische Resonantie) spectra** waarbij de interactie met een extern magnetisch veld en dit ongepaard elektron wordt beschouwd. Voor deze systemen zijn voornamelijk de hyperfijn- en g-tensor relevant. De **theoretische berekening van EPR spectra van componenten in nanoporeuze materialen** (zoals zeolieten) is zeer uitdagend. In de praktijk wordt er gebruikt gemaakt van eindige clustermodellen (zie Figuur 1) of van periodieke berekeningen.

Figuur 1. Voorstelling van eventuele zeolietmodellen.

Doelstelling Het doel van deze thesis is de modelontwikkeling en berekening van EPR spectra met behulp van ab-initio methoden (DFT: Density Functional Theory). Het Centrum voor Moleculaire Modelling beschikt over een ruime expertise in de berekening van EPR data.

In eerste instantie zullen de spectra van **kleine moleculaire systemen** berekend worden d.m.v. bestaande pakketten. Een volgende stap is het in rekening brengen van een **nanoporeus materiaal**, bv. een zeoliet. Voor dit gedeelte zal er overgegaan worden op meer complexe modelleringstechnieken (bv. grote clusters en/of periodieke rekenschema's). Door middel van deze kwantummechanische beschrijving kan een atomair beeld verkregen worden van de optredende radicalaire systemen. Dit onderzoek zal bijdragen tot het voostellen van nieuwe reactieroutes binnen belangrijke industriële processen. Het voorgestelde onderzoekswerk is uitdagend en afwisselend, en vereist zowel technische vaardigheden als creativiteit en fysisch inzicht.

Promotoren: Prof. Dr. ir. V. Van Speybroeck - veronique.vanspeybroeck@ugent.be (09/264.65.58),
Dr. ir. K. Hemelsoet - karen.hemelsoet@ugent.be (09/264.65.64) / **Begeleiding:** ir. A. Van Yperen - De
Deyne - andy.vanyperendedeyne@ugent.be (09/264.66.19) / <http://molmod.ugent.be/student-corner>